

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-349007

(43)Date of publication of application : 09.12.2004

(51)Int.Cl.

H05B 33/14  
H05B 33/22

(21)Application number : 2003-141973

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 20.05.2003

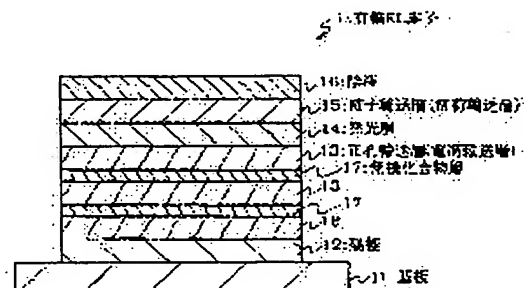
(72)Inventor : KAWAMURA HISAYUKI

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND DISPLAY DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic EL element capable of driving at low voltage despite its thick film structure.

SOLUTION: In the organic electroluminescent element 1 provided with a positive electrode 12 and a negative electrode 16 forming a pair of electrodes, and a luminous layer 14 made of an organic compound interposed between the electrodes, a charge transport layer 13 made of an organic compound exists between at least either the positive electrode 12 or the negative electrode 16 and the luminous layer 14, and that, the charge transport layer 13 is in a laminated state through an inorganic compound layer 17.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

15.11.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-349007

(P2004-349007A)

(43) 公開日 平成16年12月9日 (2004. 12. 9)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	F 1	テーマコード (参考)
H 0 5 B 33/14	H 0 5 B 33/14	3 K 0 0 7
H 0 5 B 33/22	H 0 5 B 33/22	
	H 0 5 B 33/22	
	H 0 5 B 33/22	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 30 頁)

(21) 出願番号 特願2003-141973 (P2003-141973)  
 (22) 出願日 平成15年5月20日 (2003. 5. 20)

(71) 出願人 000183646  
 出光興産株式会社  
 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号  
 (74) 代理人 100086759  
 弁理士 渡辺 喜平  
 (72) 発明者 川村 久幸  
 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地  
 Fターム (参考) 3K007 AB06 DB03 EA00 EC00 FA01

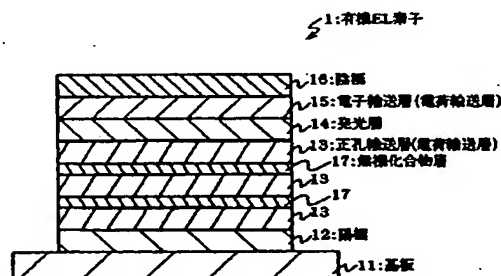
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子及び表示装置

## (57) 【要約】

【課題】 厚膜構成でありながら低電圧駆動が可能な有機EL素子を提供する。

【解決手段】 一对の電極を形成する陽極12及び陰極16と、電極に挟持された有機化合物からなる発光層14を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、陽極12又は陰極16の少なくともいずれか一方と発光層14の間に、有機化合物からなる電荷輸送層13が存在し、かつ電荷輸送層13が無機化合物層17を介して積層された構成になっていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子1である。

【選択図】 図1



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

一対の電極を形成する陽極及び陰極と、  
前記電極に挟持された有機化合物からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、  
前記陽極又は陰極の少なくともいずれか一方と発光層の間に、有機化合物からなる電荷輸送層が存在し、  
かつ前記電荷輸送層が、無機化合物層を介して積層された構成になっていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

**【請求項 2】**

前記陽極と発光層の間に、電荷輸送層として正孔輸送層が存在し、前記正孔輸送層が無機化合物層を介して積層された構成になっていることを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

**【請求項 3】**

前記陰極と発光層の間に、電荷輸送層として電子輸送層が存在し、前記電子輸送層が無機化合物層を介して積層された構成になっていることを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

**【請求項 4】**

前記無機化合物層が、周期律表の 3 ～ 12 族の元素を少なくともひとつ含むことを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

**【請求項 5】**

前記正孔輸送層中に存在する無機化合物層が、さらに周期律表の 1 ～ 2 族の元素を少なくともひとつ含むことを特徴とする請求項 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

**【請求項 6】**

請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を含んで構成される表示画面を有する表示装置。

**【発明の詳細な説明】****【0001】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、詳しくは、電荷輸送層が無機化合物を介して積層化していることを特徴としている有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

**【0002】****【従来の技術】**

電界発光を利用したエレクトロルミネッセンス素子（以下、エレクトロルミネッセンスを「EL」と略記する。）は、自己発光のため視認性が高く、かつ完全固体素子であるため、耐衝撃性に優れる等の長を有することから、各種表示装置における発光素子としての利用が注目されている。

**【0003】**

この EL 素子には、発光材料に無機化合物を用いてなる無機 EL 素子と、有機化合物を用いてなる有機 EL 素子とがあり、このうち、特に有機 EL 素子は、印加電圧を大幅に低くし得る上に、フルカラー化が容易であって、消費電力が小さく、面発光が可能であることから、次世代の発光素子として開発がなされている。

**【0004】**

この有機 EL 素子の構成については、陽極／発光層／陰極の構成を基本とし、これに正孔注入・輸送層や電子注入層を適宜設けたもの、例えば、陽極／正孔注入・輸送層／発光層／陰極や、陽極／正孔注入・輸送層／発光層／電子注入層／陰極の構成のものが知られている。

ここで正孔注入・輸送層は、陽極より正孔を注入し、有機発光層へこれを輸送する機能を有し、さらに、正孔注入層と正孔輸送層を別々に作製することもある。電子注入層は陰極

10

20

30

40

50

より電子を注入し、有機発光層へこれを輸送する機能を有する。また、有機発光層は正孔と電子の注入を受ける機能と、正孔と電子の再結合により発光する機能を有する。

【0005】

有機EL素子は、電極の間に挟持されている薄膜が、わずか100～1000nmという超薄膜であることから、数V～数十Vという低電圧で高輝度の発光が得られる。

一方、そのような超薄膜であることから、基板や電極のきわめて微細な突起物の影響を受け、ショートしたり画素欠陥になったりすることが多く、実用上大きな問題となっていた。

これを回避するため、電極に挟持される有機化合物層を厚膜にする方法が知られているが、反面、駆動電圧が高くなることから、電圧を上げることなく有機EL素子を厚膜化する技術が開示されている。 10

【0006】

例えば、高分子にアミン化合物を分散させ、酸化物を加えることによりドーピングし、それを塗布して有機EL素子の正孔輸送層を形成する技術が開示されている（例えば、非特許文献1参照。）。

しかしながら、塗布法は、薄膜の中に残留溶媒が存在し、有機EL素子の電極と反応して欠陥となることが知られている。

【0007】

また、蒸着可能な酸化物とアミン化合物とを共蒸着し、同様の正孔輸送層を形成する方法もある（例えば、特許文献1参照。）。

しかしながら、酸化性のドーパントが素子の駆動に伴い拡散し、発光層に影響を与えることが多く、長寿命な有機EL素子を得るには不向きであった。 20

【0008】

【非特許文献1】

谷口彬雄著「低駆動電圧厚膜有機EL素子」、M&BE Vol. 10, No. 1 (1999) p. 20-28

【特許文献1】

特開2000-315580号公報

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記課題に鑑み、厚膜構成でありながら低電圧駆動が可能な有機EL素子を提供することを目的とする。 30

【0010】

【課題を解決するための手段】

この課題を解決するために、本発明者らは、電荷輸送層を、無機化合物層を介した積層構成にすることにより、厚膜構成でありながら低電圧駆動が可能となることを見出し、本発明を完成させた。

【0011】

本発明の第一の態様によれば、一対の電極を形成する陽極及び陰極と、この電極に挟持された有機化合物からなる発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、陽極又は陰極の少なくともいずれか一方と発光層の間に、有機化合物からなる電荷輸送層が存在し、かつこの電荷輸送層が無機化合物層を介して積層された構成になっていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子が提供される。 40

【0012】

本発明の第二の態様によれば、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子を含んで構成される表示装置が提供される。

本発明の有機EL素子は、公知の構成と組み合わせて、民生用TV、大型表示ディスプレイ、携帯電話用表示画面など各種表示装置の画面に用いることができる。

【0013】

【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の有機EL素子は、一对の電極と、それら電極に挟持された有機化合物からなる発光層を少なくとも有している。そして、少なくとも電極のいずれか一方と発光層の間に、有機化合物からなる電荷輸送層が存在し、かつこの電荷輸送層が無機化合物層を介して積層された構成になっていることを特徴とする。

ここで、電荷輸送層とは、正孔又は電子を、電極から発光層へ輸送する機能を有する有機化合物からなる層を意味し、例えば、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層等がある。

#### 【0014】

図1は、本発明の一実施形態である有機EL素子の断面図である。

有機EL素子1は基板11上に、陽極12、正孔輸送層（電荷輸送層）13、発光層14、電子輸送層（電荷輸送層）15及び陰極16がこの順に積層された構造を有し、正孔輸送層（電荷輸送層）13が、無機化合物層17を介して積層された構成となっている。

基板11は、有機EL素子を支持する基板である。陽極12は、正孔を正孔輸送層13又は発光層14に注入する役割を担うものである。正孔輸送層13は、発光層14への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層である。陰極16は、電子を電子輸送層15又は発光層14に注入する役割を担うものである。電子輸送層15は、発光層14への電子の注入を助ける層である。発光層14は、主に電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげるものである。

#### 【0015】

有機EL素子1では、正孔輸送層13が、無機化合物層17を介して積層された構成となっている。

電荷輸送層である正孔輸送層を厚膜化することにより、素子のショートや、画素欠陥を防止できる。しかしながら、従来、一般的である単層からなる正孔輸送層の場合、正孔輸送層の膜厚を厚くするにしたいが、素子の駆動電圧が急激に上昇するため、正孔輸送層を厚膜にするには限界があった。

一方、本発明のように、正孔輸送層13を、無機化合物層17を介して積層した構成にすることにより、正孔輸送層13の膜厚増加に伴う駆動電圧の上昇を抑制することができる。従って、単層からなる正孔輸送層13よりも厚膜化することが可能となり、有機EL素子のショートや、画素欠陥をより有効に防止できる。

尚、本実施形態では、正孔輸送層13のみを、無機化合物層17を介して積層した構成としているが、正孔輸送層13及び電子輸送層15の両方を上記の積層構成としてもよく、また、電子輸送層15のみを積層構成としてもよい。

#### 【0016】

また、本実施形態において、正孔輸送層13の積層数は3層としているが、これに制限されるものではない。正孔輸送層13の積層数は2～10層が好ましい。正孔輸送層13は、それぞれの層が異なっている、同一でもよい。

同様に、無機化合物層17の積層数は2層としているが、これに制限されるものではない。無機化合物層17の積層数は1～9層が好ましい。

尚、無機化合物層17が、二層以上形成されている場合は、それぞれの層が異なっている、同一でもよい。

#### 【0017】

無機化合物層17の膜厚は、数nm～数十nmの範囲から選択される。具体的には、1～20nm、好ましくは1～10nmである。

また、正孔輸送層13の膜厚は、5nm～5μmの範囲で適宜選択することが好ましく、特に5nm～100nmの範囲とすることが好ましい。

尚、電子輸送層15を、無機化合物層17を介した積層構成とするときは、正孔輸送層13の構成と同様な膜厚・積層数とすることが好ましい。

#### 【0018】

本発明において、無機化合物層は、周期表における3～12族の元素を少なくともひとつ

10

20

30

40

50

含む無機化合物層であることが望ましい。

尚、本明細書において周期表とは、長周期型周期表を意味する。

具体的には、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Y、Zr、Nb、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、Hf、Ta、W、Re、Ir、Pt等の酸化物、硫化物、カルコゲナイド、ハロゲン化物、窒化物、リン化物等である。

好ましくは、酸化バナジウム、酸化マンガン、酸化ニッケル、酸化モリブデン、酸化タングステン、酸化イリジウム、硫化カドミウム、硫化モリブデン、硫化亜鉛、ヨウ化銅、臭化銀等である。

これらの無機化合物は、1種単独で使用してもよく、2種以上の組み合わせで使用してもよい。

10

#### 【0019】

無機化合物層は、さらに、周期表における1～2族の元素を少なくともひとつ含むことがより好ましい。

具体的には、Li、Na、Mg、K、Ca、Rb、Sr、Cs、Ba等、及びそれらの酸化物、硫化物、カルコゲナイド、ハロゲン化物、窒化物、リン化物等である。

好ましくは、リチウム、フッ化リチウム、酸化リチウム、ナトリウム、フッ化ナトリウム、塩化ナトリウム、フッ化マグネシウム、酸化マグネシウム、カルシウム、セシウム、酸化セシウム、フッ化セシウム、ヨウ化セシウム、酸化バリウム、塩化バリウム等である。

これらの無機化合物は、1種単独で使用してもよく、2種以上の組み合わせで使用してもよい。

20

#### 【0020】

以下、有機EL素子の構成及び各部材について説明する。

##### (1) 有機EL素子の構成

有機EL素子の構成としては、

▲1▼ 陽極／正孔輸送帯域／発光層／陰極

▲2▼ 陽極／発光層／電子輸送帯域／陰極

▲3▼ 陽極／正孔輸送帯域／発光層／電子輸送帯域／陰極

▲4▼ 陽極／正孔輸送帯域／発光層／付着改善層／陰極

▲5▼ 陽極／絶縁層／正孔輸送帯域／発光層／電子輸送帯域／陰極

▲6▼ 陽極／正孔輸送帯域／発光層／電子輸送帯域／絶縁層／陰極

▲7▼ 陽極／無機半導体層／絶縁層／正孔輸送帯域／発光層／絶縁層／陰極

▲8▼ 陽極／絶縁層／正孔輸送帯域／発光層／電子輸送帯域／絶縁層／陰極

等の構造を挙げることができる。これらの構造を基板上に形成する。

これらの中で通常▲3▼▲5▼▲6▼の構成が好ましく用いられる。

尚、本発明はこれらに限定されるものではない。

また、正孔輸送帯域は、少なくとも1層の正孔輸送層又は上述した無機化合物層を介して積層した正孔輸送層を含み、必要に応じて正孔注入層等を有する。

電子輸送帯域は、少なくとも1層の電子輸送層又は上述した無機化合物層を介して積層した電子輸送層を含み、必要に応じて電子注入層等を有している。

30

#### 【0021】

##### (2) 透光性基板

本発明の有機EL素子は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は、有機EL素子を支持する基板であり、400～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上で、平滑な基板が好ましい。

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等が挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。

尚、上記の構成は、発光層で発した光を基板側から取り出す素子の場合であるが、これに

40

50

限られず、基板の反対側から光を取り出すこともできる。この場合、基板は透明でなくともよい。

【0022】

(3) 陽極

有機薄膜EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。

本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NE SA)、金、銀、白金、銅等が適用できる。

【0023】

陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。

発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10 nm~1 μm、好ましくは10~200 nmの範囲で選択される。

【0024】

(4) 発光層

有機EL素子の発光層は以下の機能を併せ持つものである。即ち、

▲1▼注入機能；電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能

▲2▼輸送機能；注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能

▲3▼発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能がある。

【0025】

但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

この発光層を形成する方法としては、例えば、蒸着法、スピコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。

ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

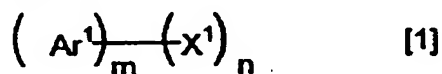
【0026】

また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

発光層に用いられる材料は、長寿命な発光材料として公知のものをを用いることが可能であるが、式[1]で示される材料を発光材料として用いることが望ましい。

【0027】

[化1]



(式中、Ar<sup>1</sup>は核炭素数6~50の芳香族環であり、X<sup>1</sup>は置換基である。mは1~5の整数、nは0~6の整数である。尚、m≧2のとき、Ar<sup>1</sup>はそれぞれ同じでも異なってもよく、n≧2のとき、X<sup>1</sup>はそれぞれ同じでも異なっても良い。mは1~2、nは0~4が好ましい。)

【0028】

Ar<sup>1</sup>の芳香族環の具体例として、フェニル環、ナフチル環、アントラセン環、ビフェニル

レン環、アズレン環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナントレン環、フルオランテン環、アセフェナンスリレン環、トリフェニレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、ピセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ペンタセン環、テトラフェニレン環、ヘキサフェン環、ヘキサセン環、ルビセン環、コロネン環、トリナフチレン環等が挙げられる。

好ましくはフェニル環、ナフチル環、アントラセン環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナントレン環、フルオランテン環、トリフェニレン環、ピレン環、クリセン環、ペリレン環、トリナフチレン環等が挙げられる。

さらに好ましくはフェニル環、ナフチル環、アントラセン環、フルオレン環、フェナントレン環、フルオランテン環、ピレン環、クリセン環、ペリレン環等が挙げられる。

10

#### 【0029】

X<sup>1</sup> の具体例は、置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族基、置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリアルチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のカルボキシル基、置換又は無置換のステリル基、ハロゲン基、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基等である。

#### 【0030】

置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ビレニル基、2-ビレニル基、4-ビレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-フルオレニル基、9, 9-ジメチル-2-フルオレニル基、3-フルオランテニル基等が挙げられる。

20

30

#### 【0031】

好ましくは、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ビレニル基、2-ビレニル基、4-ビレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、2-フルオレニル基、9, 9-ジメチル-2-フルオレニル基、3-フルオランテニル基等が挙げられる。

#### 【0032】

置換もしくは無置換の核原子数5～50の芳香族複素環基の例としては、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリ

40

50



ル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-トープチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-トープチル-1-インドリル基、4-トープチル-1-インドリル基、2-トープチル-3-インドリル基、4-トープチル-3-インドリル基等が挙げられる。

【0033】

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、

プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1, 3-ジプロモイソプロピル基、2, 3-ジプロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙げられる。

#### 【0034】

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基は-OYで表される基であり、Yの例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1, 3-ジプロモイソプロピル基、2, 3-ジプロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

#### 【0035】

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアラルキル基の例としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-*t*-ブチル基、 $\alpha$ -ナフチルメチル基、1- $\alpha$ -ナフチルエチ

ル基、2- $\alpha$ -ナフチルエチル基、1- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、 $\beta$ -ナフチルメチル基、1- $\beta$ -ナフチルエチル基、2- $\beta$ -ナフチルエチル基、1- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブromoベンジル基、m-ブromoベンジル基、o-ブromoベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

### 【0036】

置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールオキシ基は-OY'と表され、Y'の例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ビレニル基、2-ビレニル基、4-ビレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-*t*-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-*t*-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル

基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、  
 1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1,  
 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-  
 フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-  
 フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-  
 フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フ  
 ェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナ  
 ンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナ  
 ンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナ  
 ンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナ  
 ンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナ  
 ンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナ  
 ンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナ  
 ンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナ  
 ンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナ  
 ンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナ  
 ンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナ  
 ンスロリン-10-イル基、1-フェナ  
 ジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3  
 -フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノ  
 キサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基  
 、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジア  
 ズリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール  
 1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-  
 メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-  
 2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-  
 t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基  
 、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-イ  
 ンドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル-1-インドリル基、4-t-  
 ブチル-1-インドリル基、2-t-ブチル-3-インドリル基、4-t-ブチル-3-イ  
 ンドリル基等が挙げられる。

### 【0037】

置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールチオ基は-SY”と表され、Y”の例  
 としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アント  
 リル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナ  
 ントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-  
 ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ビレニル基、2-ビレニル基、4-ビレニル  
 基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフ  
 ェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、  
 m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2  
 -イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p  
 -(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1  
 -ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-  
 t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジ  
 ニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、  
 3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-イン  
 ドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-  
 イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-  
 フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-  
 ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラ  
 ニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニ  
 ル基

ル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-teeブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-teeブチル-1-インドリル基、4-teeブチル-1-インドリル基、2-teeブチル-3-インドリル基、4-teeブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

【0038】

置換もしくは無置換の炭素数1~50のカルボキシル基は-COOZと表され、Zの例と

してはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1, 3-ジプロモイソプロピル基、2, 3-ジプロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

#### 【0039】

置換又は無置換のスチリル基の例としては、2-フェニル-1-ビニル基、2, 2-ジフェニル-1-ビニル基、1, 2, 2-トリフェニル-1-ビニル基等が挙げられる。

ハロゲン基の例としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

上記の化合物の具体例を以下に示す。

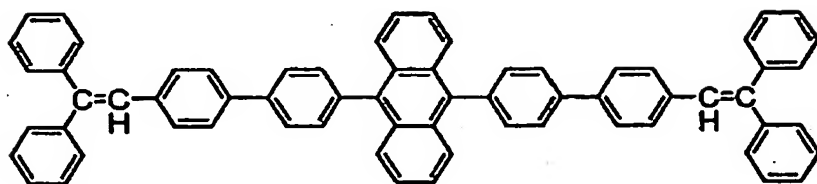
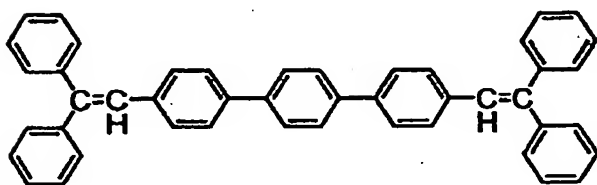
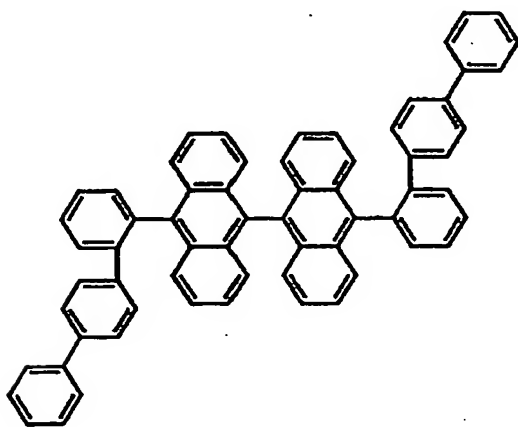
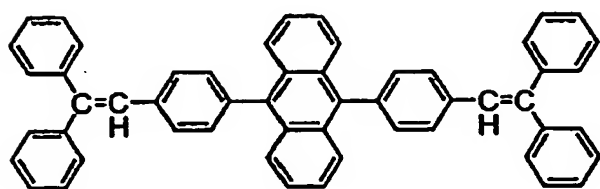
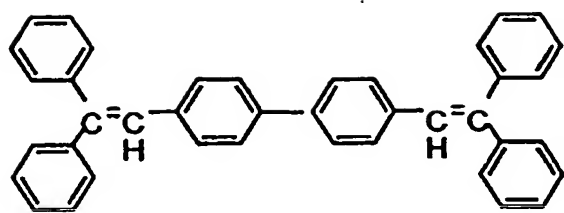
#### 【0040】

他に、8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム錯体等の金属錯体や、4, 4'-ビス(カルバゾール-9-イル)-1, 1'-ビフェニル等のヘテロ環化合物も好適である。

上記の化合物の具体例を以下に示す。

#### 【0041】

#### 【化2】

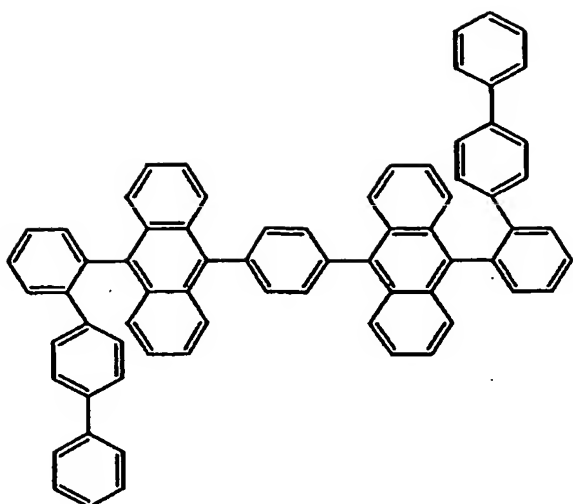


10

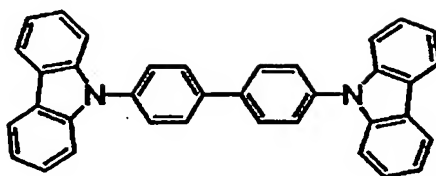
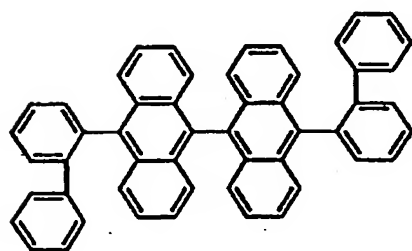
20

30

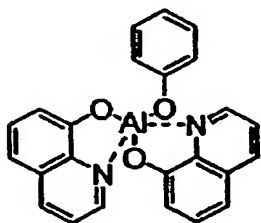
40



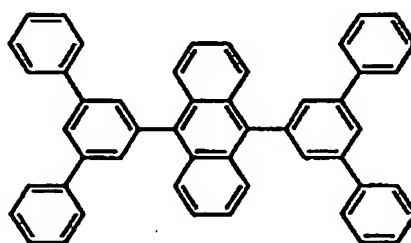
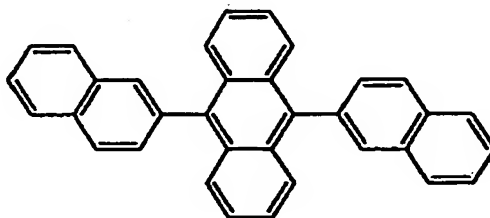
10



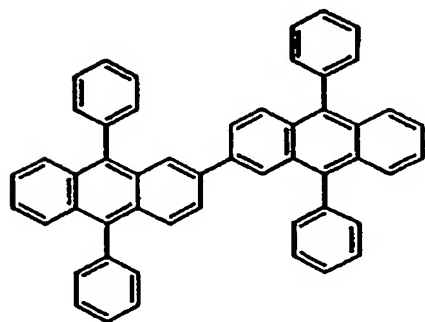
20



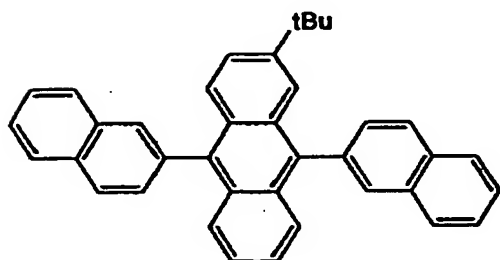
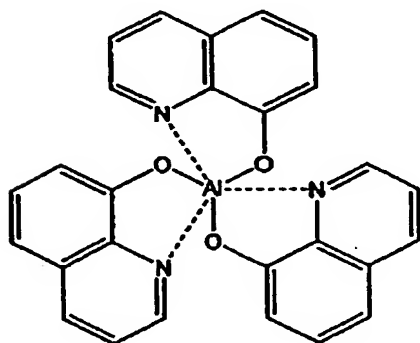
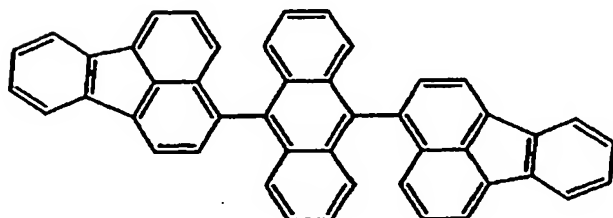
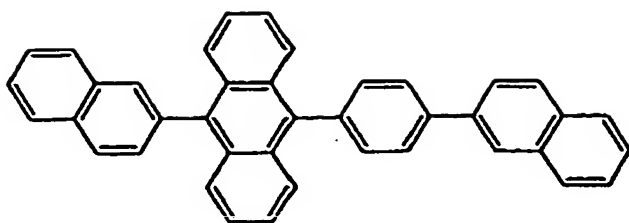
30



40







【0042】

発光層には、さらに蛍光性化合物をドーバントとして少量添加し、発光性能を向上させることが可能である。このようなドーバントは、それぞれ長寿命な発光材料として公知のものを用いることが可能であるが、式〔2〕で示される材料を発光材料のドーバント材料として用いることが望ましい。

【0043】

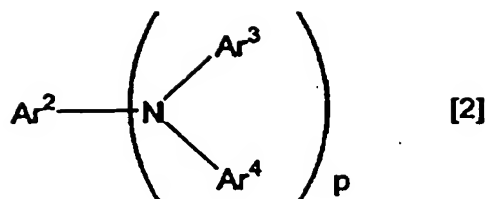
〔化3〕

10

20

30

40



(式中、 $\text{Ar}^2 \sim \text{Ar}^4$  は、置換又は無置換の核炭素数6～50の芳香族基、置換又は無置換のスチリル基である。pは1～4の整数であり、 $p \geq 2$ の場合、 $\text{Ar}^3$ 、 $\text{Ar}^4$ はそれぞれ同じでも異なっても良い。)

10

#### 【0044】

置換もしくは無置換の核炭素数6～50の芳香族基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-フルオレニル基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、3-フルオランテニル基等が挙げられる。

20

#### 【0045】

好ましくはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、2-フルオレニル基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、3-フルオランテニル基等

30

#### 【0046】

置換又は無置換のスチリル基の例としては、2-フェニル-1-ビニル基、2,2-ジフェニル-1-ビニル基、1,2,2-トリフェニル-1-ビニル基等が挙げられる。

#### 【0047】

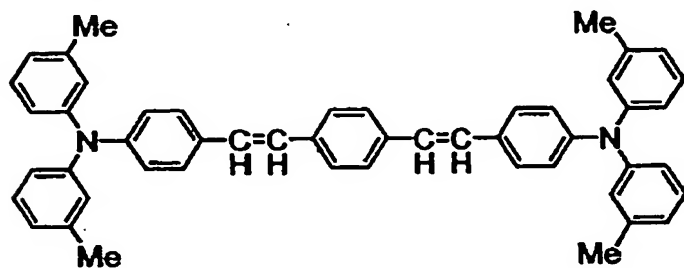
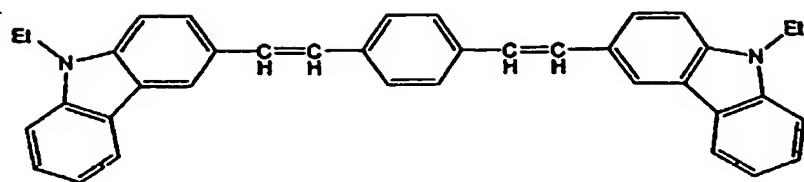
他にも、例えば、ルブレンのような縮合芳香族化合物、 $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ のような金属錯体、さらに、クマリンやDCJTBのような蛍光色素を添加してもよい。

上記化合物の具体例を以下に示す。

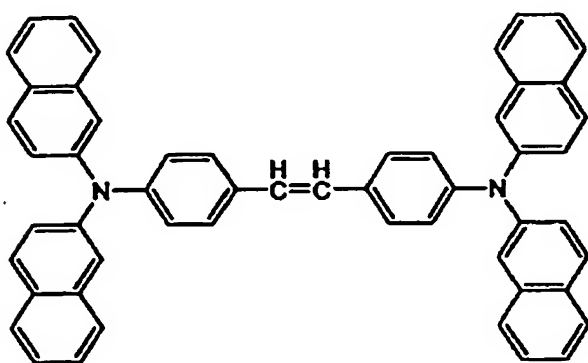
#### 【0048】

#### 【化4】

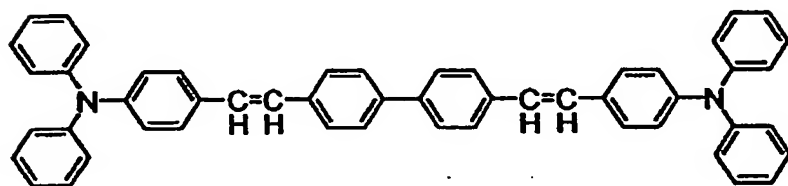
40



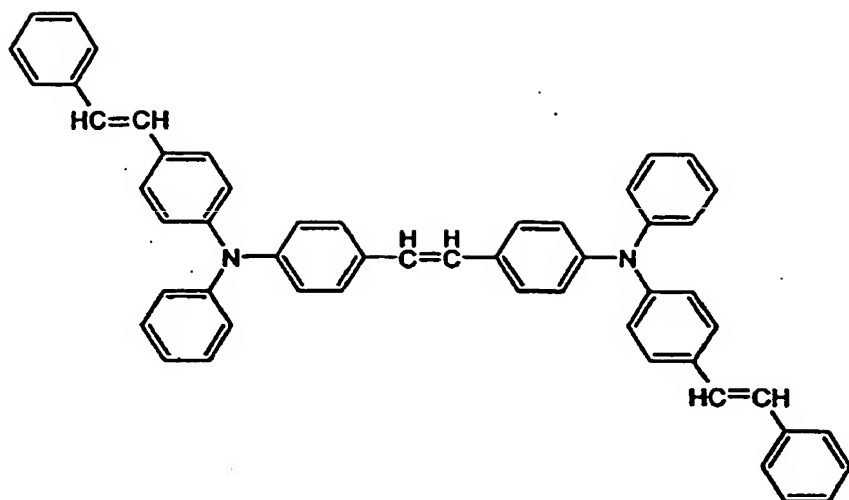
10



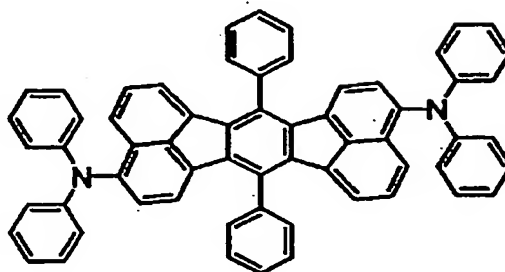
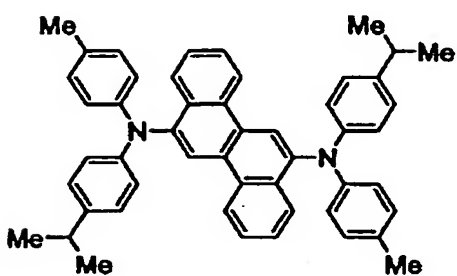
20



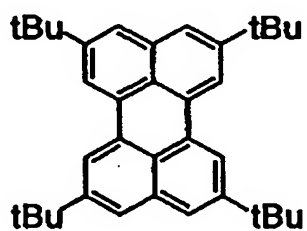
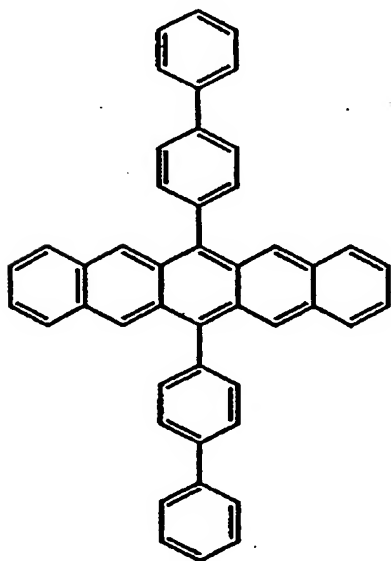
30



10

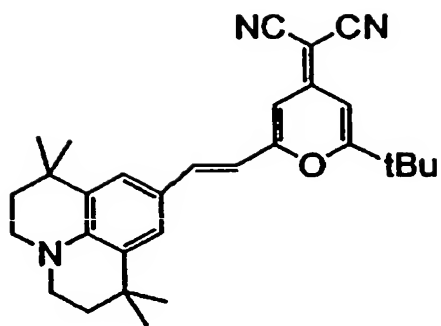


20

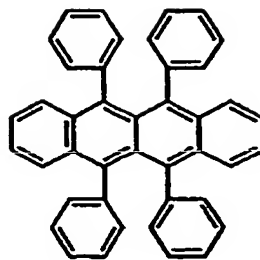


30

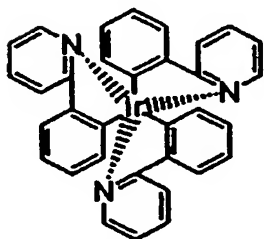
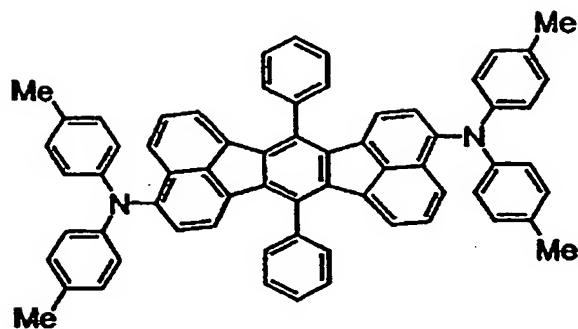
40



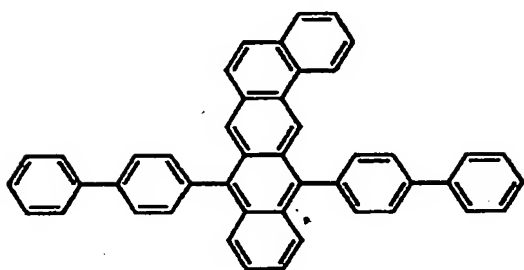
DCJT B



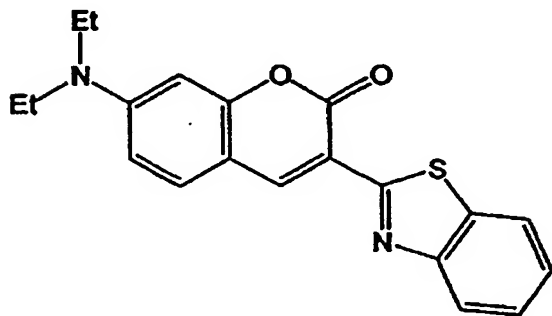
10

Ir (PPy)<sub>3</sub>

20



30



40

【0049】

## (5) 正孔輸送帯域

正孔輸送帯域は、少なくとも1層の正孔輸送層又は上述した無機化合物層を介して積層した正孔輸送層を含み、必要に応じて正孔注入層等を有する。

正孔輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動 50

度が大きく、イオン化エネルギーが通常5.5 eV以下と小さい。このような正孔輸送層としては、より低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに、正孔の移動度が、例えば、 $10^4 \sim 10^6$  V/cmの電界印加時に、少なくとも $10^{-4}$  cm<sup>2</sup>/V・秒であれば好ましい。

#### 【0050】

正孔輸送層を形成する材料としては、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

具体例として、例えば、トリアゾール誘導体（米国特許3, 112, 197号明細書等参照）<sup>10</sup>、オキサジアゾール誘導体（米国特許3, 189, 447号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報等参照）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許3, 615, 402号明細書、同第3, 820, 989号明細書、同第3, 542, 544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照）、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体（米国特許第3, 180, 729号明細書、同第4, 278, 746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照）<sup>20</sup>、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3, 615, 404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第3, 567, 450号明細書、同第3, 180, 703号明細書、同第3, 240, 597号明細書、同第3, 658, 520号明細書、同第4, 232, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3, 526, 501号明細書等参照）<sup>30</sup>、オキサゾール誘導体（米国特許第3, 257, 203号明細書等）<sup>30</sup>、スチリルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報等参照）、フルオレノン誘導体（特開昭54-110837号公報等参照）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭61-210363号公報、同第61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93455号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照）<sup>40</sup>、シラザン誘導体（米国特許第4, 950, 950号明細書）、ポリシラン系（特開平2-204996号公報）、アニリン系共重合体（特開平2-282263号公報）、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー（特にチオフエンオリゴマー）等を挙げることができる。

#### 【0051】

正孔輸送帯域には、さらに正孔の注入を助けるために、別途正孔注入層を設けることもできる。正孔注入層の材料としては、上述の正孔輸送層と同様の材料を使用することができるが、ポルフィリン化合物（特開昭63-2956965号公報等）<sup>50</sup>、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物（米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634

号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

#### 【0052】

また、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)ビフェニル(以下NP Dと略記する)、また、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4"-トリス(N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下MT DATAと略記する)等を挙げることができる。

また、芳香族ジメチリدين系化合物の他、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。

#### 【0053】

正孔輸送層及び正孔注入層は、上述した化合物を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の各層の膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm~5μmである。この正孔輸送層は、上述した材料の一種又は二種以上から構成されてもよく、また、正孔輸送層が二層以上のときは、それぞれが別種の化合物からなる正孔輸送層であってもよい。

#### 【0054】

また、有機半導体層も正孔輸送層の一部であるが、これは発光層への正孔注入又は電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$  S/cm以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや、特開平8-193191号公報に開示してある含アリールアミンオリゴマー等の導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマー等の導電性デンドリマー等を用いることができる。

#### 【0055】

##### (6) 電子輸送帯域

電子輸送帯域は、少なくとも1層の電子輸送層又は上述した無機化合物層を介して積層した電子輸送層を含み、必要に応じて電子注入層等を有している。

電子輸送層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また、付着改善層は、この電子輸送層の中で特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子輸送層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体が好適である。

上記8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシン(一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。

例えば、(8-キノリノラト)アルミニウム錯体(Alq)を電子輸送層として用いることができる。

一方オキサジアゾール誘導体としては、以下の式[3]~式[5]で表される電子伝達化合物が挙げられる。

#### 【0056】

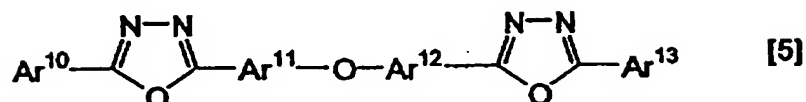
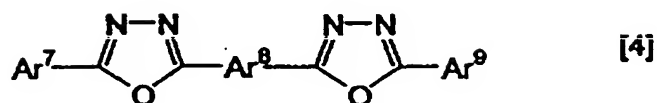
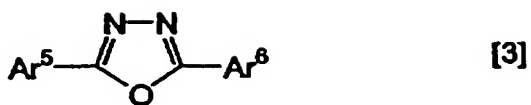
##### 【化5】

10

20

30

40



10

(式中 $\text{Ar}^5$ ,  $\text{Ar}^6$ ,  $\text{Ar}^7$ ,  $\text{Ar}^9$ ,  $\text{Ar}^{10}$ ,  $\text{Ar}^{13}$ はそれぞれ置換又は無置換のアリール基を示し、それぞれ互いに同一であっても異なってもよい。また $\text{Ar}^8$ ,  $\text{Ar}^{11}$ ,  $\text{Ar}^{12}$ は、置換又は無置換のアリーレン基を示し、それぞれ同一であっても異なってもよい)

【0057】

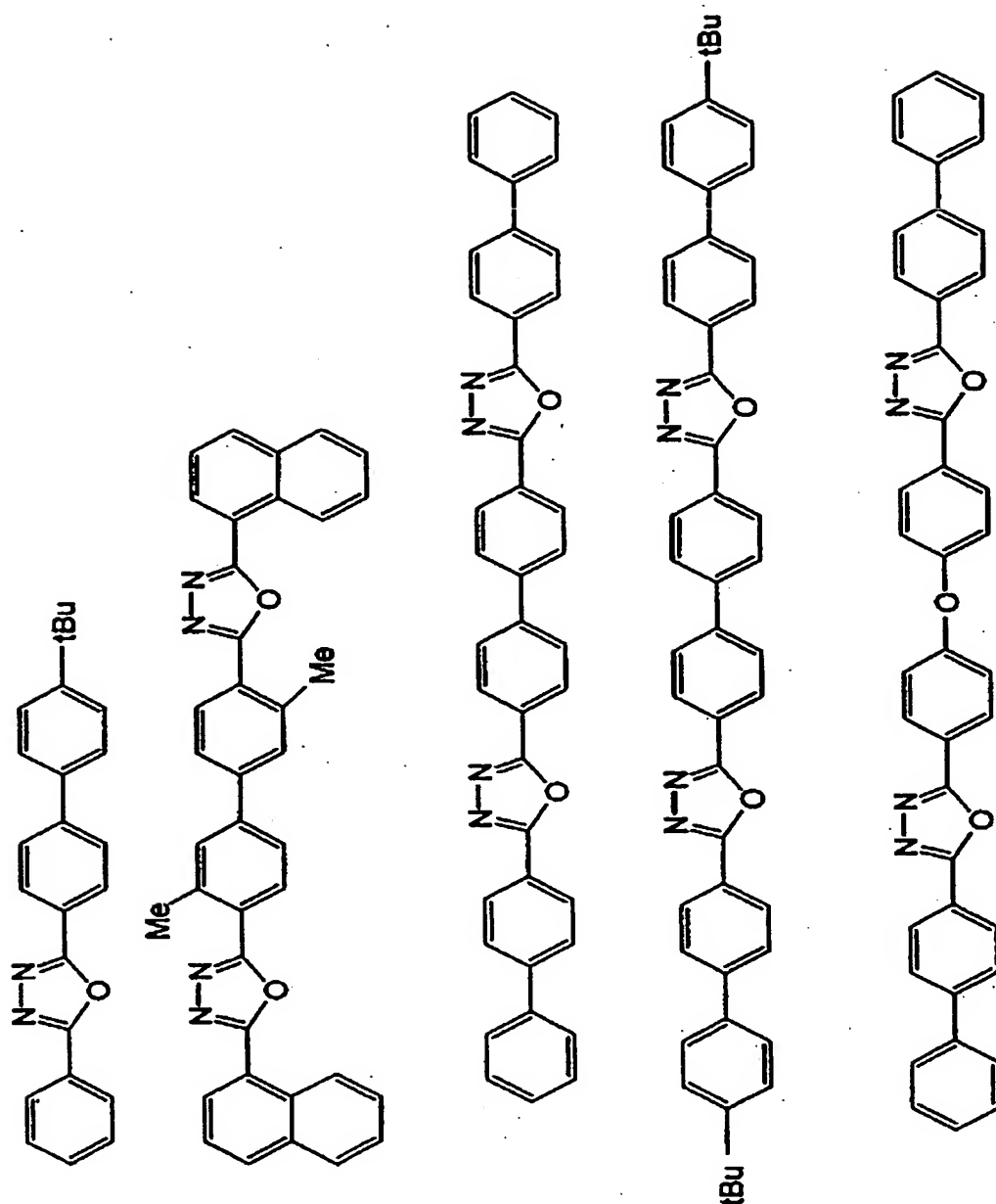
ここでアリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基が挙げられる。またアリーレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基等が挙げられる。また、置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。この電子伝達化合物は薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達性化合物の具体例としては下記のことを挙げることができる。

【0058】

【化6】

20





## 【0059】

本発明の好ましい形態に、電子を輸送する領域又は陰極と有機層の界面領域に、還元性ドーパントを含有する素子がある。ここで、還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元できる物質と定義される。従って、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物又は希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

## 【0060】

また、より具体的に、好ましい還元性ドーパントとしては、Na (仕事関数：2.36 eV)、K (仕事関数：2.28 eV)、Rb (仕事関数：2.16 eV) 及びCs (仕事関数：1.95 eV) からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属や、Ca

(仕事関数：2.9 eV)、Sr (仕事関数：2.0～2.5 eV)、及びBa (仕事関数：2.52 eV) からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、Rb及びCsからなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属であり、さらに好ましくは、Rb又はCsであり、最も好ましいのは、Csである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

#### 【0061】

また、仕事関数が2.9 eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRbあるいはCsとNaとKとの組み合わせであることが好ましい。Csを組合わせて含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

#### 【0062】

本発明においては、陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けても良い。これにより、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。

#### 【0063】

具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{LiO}$ 、 $\text{Na}_2\text{S}$ 、 $\text{Na}_2\text{Se}$ 及び $\text{NaO}$ が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 $\text{CaO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BeO}$ 、 $\text{BaS}$ 、及び $\text{CaSe}$ が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 $\text{LiF}$ 、 $\text{NaF}$ 、 $\text{KF}$ 、 $\text{LiCl}$ 、 $\text{KCl}$ 及び $\text{NaCl}$ 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 $\text{CaF}_2$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{SrF}_2$ 、 $\text{MgF}_2$ 及び $\text{BeF}_2$ といったフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

#### 【0064】

また、電子注入層を構成する半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。尚、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

#### 【0065】

##### (7) 陰極

陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属等が挙げられる。

陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。

ここで、発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。

10

20

30

40

50

また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm $\sim$ 1  $\mu$ m、好ましくは50 $\sim$ 200 nmである。

【0066】

(8) 絶縁層

有機EL素子は超薄膜に電界を印可するために、リークやショートによる画素欠陥が生じやすい。これを防止するために、一対の電極間に絶縁性の薄膜層を挿入することが好ましい。

絶縁層に用いられる材料としては、例えば、酸化アルミニウム、弗化リチウム、酸化リチウム、弗化セシウム、酸化セシウム、酸化マグネシウム、弗化マグネシウム、酸化カルシウム、弗化カルシウム、窒化アルミニウム、酸化チタン、酸化珪素、酸化ゲルマニウム、窒化珪素、窒化ホウ素、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム等が挙げられる。

これらの混合物や積層物を用いてもよい。

【0067】

(9) 有機EL素子の作製例

以上例示した材料及び方法により、陽極、発光層、電荷輸送層として正孔輸送層及び／又は電子輸送層、必要に応じて正孔注入層、電子注入層等を形成し、さらに陰極を形成することにより有機EL素子を作製することができる。また、陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

【0068】

以下、透光性基板上に陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極が順次設けられた構成の有機EL素子(図1参照)の作製例を記載する。

まず、適当な透光性基板11上に陽極材料からなる薄膜を1  $\mu$ m以下、好ましくは10 $\sim$ 200 nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して陽極12を作製する。

次に、この陽極12上に正孔輸送層13を設ける。

正孔輸送層13の形成は、前述したように真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔輸送層13を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物(正孔輸送層13の材料)、目的とする正孔輸送層13の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に、蒸着源温度50 $\sim$ 450 $^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $10^{-7}\sim 10^{-3}$  torr、蒸着速度0.01 $\sim$ 50 nm/秒、基板温度 $-50\sim 300^{\circ}\text{C}$ 、膜厚5 nm $\sim$ 5  $\mu$ mの範囲で適宜選択することが好ましい。

【0069】

この正孔輸送層13の上に、無機化合物層17を数nm $\sim$ 数十nm形成する。この無機化合物層17は様々な方法で成膜できるが、具体的には、真空蒸着、スパッタリング、電子ビーム蒸着等である。真空蒸着法により無機化合物層17を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物(正孔輸送層の材料)、目的とする正孔輸送層13の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度500 $\sim$ 1000 $^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $10^{-7}\sim 10^{-3}$  torr、蒸着速度0.01 $\sim$ 50 nm/秒、基板温度 $-50\sim 300^{\circ}\text{C}$ 、膜厚1 nm $\sim$ 20 nmの範囲で適宜選択することが好ましい。

【0070】

以上、正孔輸送層13及び無機化合物層17の形成を順次繰り返し、正孔輸送層13を積層することによって、駆動電圧の上昇を抑制しつつ、正孔輸送層13及び無機化合物層17により形成される部分を、数十nm $\sim$ 数 $\mu$ mまで厚膜化できる。正孔輸送層13の積層数は、特に制限はないが、2 $\sim$ 10回が好ましい。

【0071】

次に、正孔輸送層13上に発光層14を設ける。発光層14の形成も、所望の有機発光材料を用いて真空蒸着法、スパッタリング、スピンコート法、キャスト法等の方法により有

機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層 14 を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物により異なるが、一般的に正孔輸送層 13 と同じような条件範囲の中から選択することができる。

#### 【0072】

次に、この発光層 14 上に電子輸送層 15 を設ける。正孔輸送層 13、発光層 14 と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は正孔輸送層 13、発光層 14 と同様の条件範囲から選択することができる。

尚、正孔輸送層 13 と同様に、電子輸送層 15 を、無機化合物層 17 を介して積層した構成とすることも可能である。電子輸送層 15 を積層することによって電子輸送層 15 及び無機化合物層 17 によって形成される部分を数十 nm～数  $\mu$ m まで厚膜化できる。電子輸送層 15 の積層数は特に制限はないが、2～10 回が好ましい。

#### 【0073】

最後に、陰極 16 を積層して有機 EL 素子 1 を得ることができる。陰極 16 は金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。下地の有機物層を製膜時の損傷から守るために、真空蒸着法が好ましい。

上述した有機 EL 素子 1 の作製は、一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

#### 【0074】

尚、本発明の有機 EL 素子の、各層の形成方法は特に限定されない。例えば、従来公知の真空蒸着法、分子線蒸着法 (MBE 法) あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンドコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

#### 【0075】

本発明の有機 EL 素子の各有機層の膜厚は、特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数 nm から 1  $\mu$ m の範囲が好ましい。

尚、有機 EL 素子に直流電圧を印加する場合、陽極を +、陰極を - の極性にして、5～40 V の電圧を印加すると発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には陽極が +、陰極が - の極性になった時のみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。

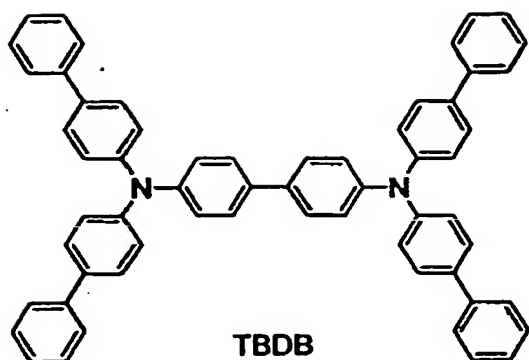
#### 【0076】

##### 【実施例】

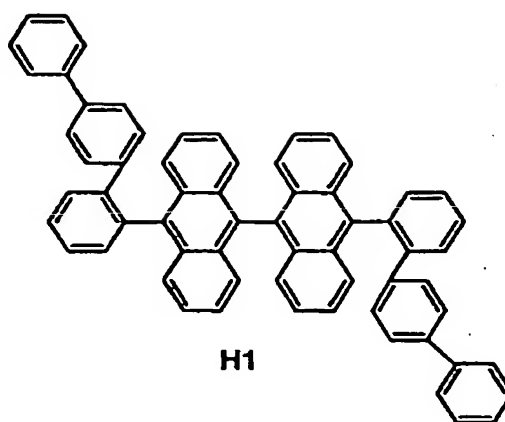
以下、本発明の実施例を詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されない。実施例において使用した化合物を以下に示す。

#### 【0077】

##### 【化 7】

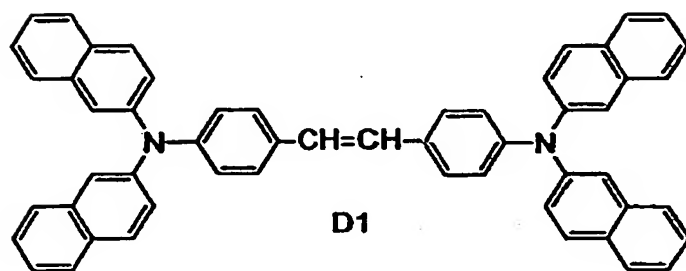


TBDB

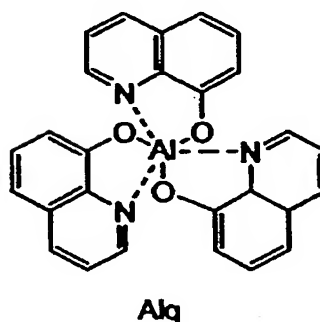


H1

10



D1



Alq

20

## 【0078】

## 実施例1

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極ライン付きガラス基板（ジオマティック社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行った後、UVオゾン洗浄を30分間行った。

30

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を、真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、透明電極ラインが形成されている側の面上に透明電極を覆うようにして、膜厚60nmのN,N,N',N'-テトラ（4-ビフェニル）-ジアミノビフェニレン層（以下、TBDB層という）を成膜した。この膜は正孔輸送層として機能する。

## 【0079】

TBDB膜の成膜に続いて、このTBDB膜上に抵抗加熱ボートを用いて、三酸化モリブデンとセシウム（Cs源：サエスゲッター社製）を10nm共蒸着した。蒸着の比率は三酸化モリブデン10nmに対し、セシウム0.1nm成膜する比率にした。この膜は無機化合物層として機能する。

40

この上に、先程と同様にTBDB層を60nm蒸着した。

## 【0080】

次に、このTBDB層上に、膜厚40nmのホストH1を蒸着し成膜した。同時に発光分子として、ドバントD1を共蒸着した。このときの蒸着比は、H1:D1=20:1（重量比）とした。この膜は、発光層として機能する。

さらに、膜厚20nmのAlqを蒸着し成膜した。これは、電子輸送層として機能する。この後、絶縁層としてLiFを1nm蒸着した。

最後に、金属Alを150nmの厚さに蒸着し、金属陰極を形成し有機EL発光素子を形成した。

## 【0081】

50

この有機EL素子について、1,000nitの輝度で発光させた際の駆動電圧と、初期輝度(L0)を1,000nitとして発光させたときの半減寿命を測定した。

また、この有機EL素子を105℃で100時間保存した後、室温に戻して電流のリークの有無を調べた。

尚、電流のリークの有無は、通常とは逆の極性で電圧を印加し、漏れ電流の有無を確認することによって行った。具体的には、逆の極性で5Vの電圧を印加して漏れ電流の有無を評価した。

実施例1及び以下に示す実施例2並びに比較例1～3の測定結果を表1に示す。

【0082】

【表1】

	駆動電圧 (@1,000nit)	半減寿命 (L0=1,000nit)	リークの有無
実施例1	5.8V	1,500h	リーク素子なし
比較例1	7.5V	1,400h	リーク素子なし
実施例2	6.3V	1,300h	リーク素子なし
比較例2	7.8V	1,300h	リーク素子なし
比較例3	6.6V	1,600h	リーク素子あり

【0083】

比較例1

実施例1で、無機化合物層を形成しなかった以外は、全く同様にして有機EL素子を作製した。

この有機EL素子を実施例1と同様に評価した。

【0084】

実施例2

実施例1と同様に洗浄したITO透明電極ライン付きガラス基板の透明電極ラインが形成されている側の面上に、前記透明電極を覆うようにして膜厚60nmのTBDB層を成膜した。この膜は正孔輸送層として機能する。

この上に、膜厚40nmのH1を蒸着し成膜した。同時に発光分子として、ドーバントD1を共蒸着した。蒸着比はH1:D1=重量比20:1で蒸着した。この膜は、発光層として機能する。

さらに、膜厚20nmのAlqを蒸着し成膜した。これは、電子輸送層として機能する。Alq膜の成膜に続いて、このAlq膜上に抵抗加熱ボートを用いて三酸化モリブデンとフッ化セシウムを10nm共蒸着した。蒸着の比率は三酸化モリブデン10nmに対し、フッ化セシウム0.1nm成膜する比率にした。この膜は無機化合物層として機能する。さらに、膜厚20nmのAlqを無機化合物層の上に蒸着し成膜し、実施例1と同様に、絶縁層及び金属陰極を形成し、有機EL発光素子を形成した。

この有機EL素子を実施例1と同様に評価した。

【0085】

比較例2

実施例2で、無機化合物層を形成しなかった以外は、全く同様にして有機EL素子を作製した。この有機EL素子を実施例1と同様に評価した。

【0086】

比較例3

比較例 1 で、T B D B 層を一層とし、膜厚を 60 nm とした以外は、全く同様に有機 E L 素子を作製した。この有機 E L 素子を実施例 1 と同様に評価した。

【0087】

上記の測定結果から、無機化合物層の有無にかかわらず、半減寿命に差はないものの、無機化合物層を形成した素子では、素子の層厚が厚いにもかかわらず、駆動電圧が低下することが確認できた。

一方、105℃で100時間保存した後の、有機 E L 素子のリークの有無を調べたところ、正孔輸送層を薄くした比較例 3 の素子ではリークを生じた。

【0088】

【発明の効果】

10

本発明によれば、厚膜構成でありながら低電圧駆動が可能な有機 E L 素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の一実施形態の有機 E L 素子の断面図である。

【符号の説明】

- 1、2 有機 E L 素子
- 11 基板
- 12 陽極
- 13 正孔輸送層（電荷輸送層）
- 14 発光層
- 15 電子輸送層（電荷輸送層）
- 16 陰極
- 17 無機化合物層

20

【図 1】

